

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号
特開2001-273914
(P2001-273914A)

(43) 公開日 平成13年10月5日 (2001.10.5)

(51) Int.Cl. ⁷	識別記号	F I	データベース (参考)
H 0 1 M 8/02		H 0 1 M 8/02	Y 5 H 0 2 6
			E
8/12		8/12	
8/24		8/24	E

審査請求 未請求 請求項の数14 O L (全 11 頁)

(21) 出願番号 特願2000-377743 (P2000-377743)

(22) 出願日 平成12年12月12日 (2000. 12. 12)

(31) 優先権主張番号 特願2000-11795 (P2000-11795)

(32) 優先日 平成12年1月20日 (2000. 1. 20)

(33) 優先権主張国 日本 (J P)

(31) 優先権主張番号 特願2000-11877 (P2000-11877)

(32) 優先日 平成12年1月20日 (2000. 1. 20)

(33) 優先権主張国 日本 (J P)

(71) 出願人 000004064
日本碍子株式会社
愛知県名古屋市長区須田町2番56号

(72) 発明者 松沢 素一郎
愛知県名古屋市長区須田町2番56号 日
本碍子株式会社内

(72) 発明者 川崎 真司
愛知県名古屋市長区須田町2番56号 日
本碍子株式会社内

(74) 代理人 100072051
弁理士 杉村 興作 (外1名)

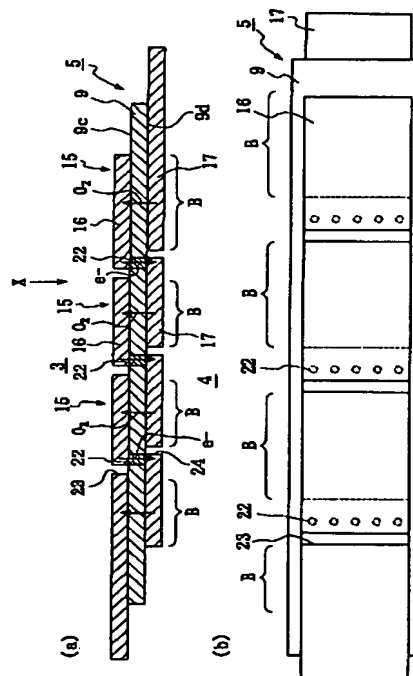
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 電気化学装置および集積電気化学装置

(57) 【要約】

【課題】複数の電気化学セルを電気的に接続してなる構造の電気化学装置において、各電気化学セルの各電極に至るまでの各ガスの拡散抵抗を減らし、かつ、隣接する電気化学セルの接続部分の材質の劣化を抑制する。

【解決手段】電気化学装置5は、固体電解質層9と、固体電解質層9上に設けられた複数の第一の電極16と複数の第二の電極17とを備える。第一の電極16と第二の電極17とによって複数の電気化学セル15が構成されている。固体電解質層を貫通する少なくとも一つのスルーホール導電体22を備えている。固体電解質層において隣接する少なくとも二つの電気化学セル15が、スルーホール導電体22を介して電気的に接続されている。



【特許請求の範囲】

【請求項１】固体電解質層と、この固体電解質層上に設けられた複数の第一の電極と、前記固体電解質層上に設けられた複数の第二の電極とを備えており、前記第一の電極と前記第二の電極とによって複数の電気化学セルが構成されている電気化学装置であって、前記固体電解質層を貫通する少なくとも一つのスルーホール導電体を備えており、前記固体電解質層において隣接する少なくとも二つの前記電気化学セルが前記スルーホール導電体を介して電氣的に接続されていることを特徴とする、電気化学装置。

【請求項２】前記固体電解質層の一方の面上に前記複数の第一の電極が設けられており、前記固体電解質層の他方の面上に前記複数の第二の電極が設けられていることを特徴とする、請求項１記載の装置。

【請求項３】ある電気化学セルの前記第一の電極の端部と、この電気化学セルに隣接する他の電気化学セルの前記第二の電極の端部とが、前記固体電解質層を挟んで対向する位置に設けられており、前記第一の電極の前記端部と前記第二の電極の前記端部とが、前記スルーホール導電体によって電氣的に接続されていることを特徴とする、請求項１または２記載の装置。

【請求項４】ある電気化学セルの前記第一の電極の端部と、この電気化学セルに隣接する他の電気化学セルの前記第二の電極の端部との間に、前記固体電解質層とは別体の絶縁体が介在していることを特徴とする、請求項１～３のいずれか一つの請求項に記載の装置。

【請求項５】前記絶縁体が、前記第一の電極の端部と前記固体電解質層との間に設けられている絶縁層であることを特徴とする、請求項４記載の装置。

【請求項６】前記絶縁体が、前記第二の電極の端部と前記固体電解質層との間に設けられている絶縁層であることを特徴とする、請求項４または５記載の装置。

【請求項７】隣接する一対の前記電気化学セルの間で前記第一の電極間に隙間が設けられており、この隙間に前記絶縁体が露出していることを特徴とする、請求項４～６のいずれか一つの請求項に記載の装置。

【請求項８】隣接する一対の前記電気化学セルの間で前記第二の電極間に隙間が設けられており、この隙間に前記絶縁体が露出していることを特徴とする、請求項４～７のいずれか一つの請求項に記載の装置。

【請求項９】前記絶縁層が、前記複数の電気化学セルが配列されている配列方向と垂直な方向において、前記第一の電極または前記第二の電極によって被覆されていない延在部を備えていることを特徴とする、請求項５～８のいずれか一つの請求項に記載の装置。

【請求項１０】前記スルーホール導電体と前記固体電解質層との間に絶縁体が設けられていることを特徴とする、請求項１～９のいずれか一つの請求項に記載の装置。

【請求項１１】前記隣接する少なくとも二つの前記電気化学セルが前記スルーホール導電体を介して直列接続されていることを特徴とする、請求項１～１０のいずれか一つの請求項に記載の装置。

【請求項１２】請求項２～１１のいずれか一つの請求項に記載の電気化学装置を複数備えている集積電気化学装置であって、

セラミックスからなる周壁部および前記周壁部に埋設されている周壁部内スルーホール導電体を備えており、前記周壁部の内側に第一のガス通路と第二のガス通路とが形成されており、前記複数の固体電解質層が前記周壁部の内側に設けられており、前記第一の電極が前記第一のガス通路に面しており、前記第二の電極が前記第二のガス通路に面していることを特徴とする、集積電気化学装置。

【請求項１３】隣接する一対の前記電気化学装置が前記周壁部内スルーホール導電体によって電氣的に直列接続されていることを特徴とする、請求項１２記載の装置。

【請求項１４】前記周壁部と前記固体電解質層とが同種のセラミック固体電解質材料からなることを特徴とする、請求項１２または１３記載の装置。

【発明の詳細な説明】

【０００１】

【発明の属する技術分野】本発明は、電気化学セルを複数備えた一体型の電気化学装置に関するものである。

【０００２】

【従来の技術】「燃料電池発電」（電気学会、燃料電池の運転性調査専門委員会編）コロナ社、第７７頁には、多孔質基体上に複数の固体電解質型燃料電池の単電池を形成することが記載されている。即ち、多孔質基体の表面上に、微細な空気極、固体電解質膜、燃料極を順次形成することで各単電池を形成する。この際、多孔質基体上に多数の単電池を形成する。そして、隣接する単電池の燃料極と空気極との間にインターコネクター膜をそれぞれ形成し、隣接する単電池を電氣的に直列接続する。そして、多孔質基体を酸化性ガスが透過し、多孔質基体に接触している空気極内を拡散する。この一方、燃料ガスは燃料極を透過し、発電に寄与する。

【０００３】

【発明が解決しようとする課題】こうした集合電池は、小さい体積内に多数の発電素子を集積し、単位空間当たりの発電量を向上させ得るものであり、このため優れた設計思想として認知されてきた。

【０００４】しかし、本発明者が更に検討を加えてみると、実際には以下の困難な問題があった。即ち、例えば酸化性ガスは、いったん多孔質基板を通過し、その後で、多孔質基板に接触する空気極内を拡散する必要がある。しかし、多孔質基板は、集合電池の全体の構造強度を保持する部分であり、このためにある程度の厚さと緻密性とが必要である。ところが、多孔質基板が厚くな

り、あるいは気孔率を低下させると、多孔質基板中を酸化性ガスが透過しにくくなり、このために多孔質基板に接触する空気極内まで拡散しにくく、利用効率が低くなる。

【0005】また、隣接する電気化学セルは、多孔質基板上に成膜されたインターコネクター膜によって接続する必要がある。従って、インターコネクターは、燃料ガスに曝露されると共に、多孔質基板を拡散してくる酸化性ガスに対しても必然的に曝露される。この曝露時の温度は例えば1000℃である。このため、インターコネクターの材質は、高い導電性、高温における酸化ガスへの安定性、および高温における燃料ガスへの安定性という3つの条件を備えていなければならないが、実際にはこうした材質はほとんど知られていない。この結果、隣接する単電池間の接続に伴う抵抗が大きくなったり、あるいは長期間運転すると、インターコネクターの材質の劣化によって単電池間の接続抵抗が増大したりする。

【0006】本発明の課題は、複数の電気化学セルを電気的に接続してなる構造の電気化学装置において、各電気化学セルの各電極に至るまでの各ガスの拡散抵抗を減らすことができるようにし、かつ、隣接する電気化学セルの接続部分の材質の劣化を抑制できるようにすることである。

【0007】

【課題を解決するための手段】本発明は、固体電解質層と、この固体電解質層上に設けられた複数の第一の電極と、固体電解質層上に設けられた複数の第二の電極とを備えており、第一の電極と第二の電極とによって複数の電気化学セルが構成されている電気化学装置であって、固体電解質層を貫通する少なくとも一つのスルーホール導電体を備えており、隣接する少なくとも二つの電気化学セルがスルーホール導電体を介して電気的に接続されていることを特徴とする。

【0008】以下、適宜図面を参照しつつ、本発明を説明する。

【0009】図1(a)は、本発明の一実施形態に係る電気化学装置5を示す断面図であり、(b)は、図1(a)の装置5を第一の電極16側から見た平面図である。

【0010】図1の装置5には、複数個、例えば4個の電気化学セル15が設けられており、各セル15は互いに直列接続されている。即ち、固体電解質層9は、本例では平面的に見て長方形の平板形状をしている。固体電解質層9の一方の面9c上には第一の電極16が例えば4個形成されており、他方の面9d上には第二の電極17が例えば4個形成されている。各第一の電極16は、それぞれ対応する第二の電極17と電気化学セル15を構成している。Bは、電気化学装置5の主要な作用領域である。

【0011】隣接する第一の電極16の間には細長い隙

間23が形成されており、隣接するセルの電極16間を絶縁している。また、隣接する第二の電極17の間には細長い隙間24が形成されており、隣接するセルの電極17間を絶縁している。各電極16の端部は、隣接するセルの電極17の端部に対して、固体電解質層9を挟んで対向している。固体電解質層9内には、前記した端部の対向領域においてスルーホール導電体22が設けられている。各スルーホール導電体22によって、隣接する電気化学セル15の電極16と17とが直列に接続されている。

【0012】こうした電気化学装置によれば、1枚の基板上に複数の電気化学セルを設けた装置において、各電気化学セルの各電極に至るまでの各ガスの拡散抵抗を減らすことができる。なぜなら、固体電解質層それ自体を、全体を支持する基板として使用し、別体の多孔質基板を必要としないからである。また、スルーホール導電体22の側周面は固体電解質層9によって被覆されており、従って酸化性ガスや燃料ガスには曝露されないの、スルーホール導電体の材質の劣化も生じにくい。むしろ、スルーホール導電体22の図1において上側端面と下側端面のみは、電極16、17を介して拡散してきた外部のガスに対して接触する。しかし、これは電極を拡散透過してきた後のガスなので、ガス中の酸素や燃料の濃度は低く、ガスの絶対量も少ないので、スルーホール導電体の劣化の度合いは少ない。

【0013】なお、図1の例では、隣接するセル15を直列接続した。このように、一枚の固体電解質層において複数の電気化学セルを直列接続することで、例えば取り出し電圧を増大させることができ、その分電流値を低減させることができる。電流値が減少すると、それだけ装置内部における電流損失を低減できる。

【0014】特に好適な実施形態においては、固体電解質層中において隣接するセルを直列接続する。しかし、隣接するセルを並列接続することも可能である。

【0015】好適な実施形態においては、固体電解質層の一方の面上に複数の第一の電極が設けられており、固体電解質層の他方の面上に複数の第二の電極が設けられている。

【0016】また、好適な実施形態においては、ある電気化学セルの第一の電極の端部と、この電気化学セルに隣接する他の電気化学セルの第二の電極の端部とが、固体電解質層を挟んで対向する位置に設けられており、第一の電極の端部と第二の電極の端部とが、スルーホール導電体によって電気的に接続されている。ここで、第一の電極の端部と第二の電極の端部とが固体電解質層を挟んで対向する位置に設けられているとは、固体電解質層に対して垂直な方向X(図1(a)参照)から見て重複する位置にあることを意味している。この場合には、この重複領域内にスルーホール導電体を設けることによって、第一の電極の端部と第二の電極の端部とを容易に接

続できる。

【0017】本発明の電気化学装置は、固体電解質型燃料電池の他、酸素ポンプや高温水蒸気電解セルとして使用できる。このセルは、水素の製造装置に使用でき、また水蒸気の除去装置に使用できる。更に、本発明の装置を、 NO_x 、炭化水素、一酸化炭素の各分解セルとして使用できる。

【0018】第一のガスと第二のガスは、同じであっても、異なってもよい。その種類は、酸化性ガス、還元性ガス、不活性ガスなどがあり、用途によって好ましい実施形態がある。

【0019】燃料電池の場合には、第一のガスが酸化性ガスであり、第二のガスが還元性ガスである。酸化性ガスとしては、空気や酸素などがある。また、還元性ガスとしては、水素やメタン、一酸化炭素などを含むガスを例示できる。燃料電池では、第一の電極が電位が高く、陽極であり、第二の電極は電位が低く、陰極である。この場合の第一の電極はカソード、第二の電極はアノードの働きをする。

【0020】更に、酸素ポンプの場合には、第一、第二のガスは酸化性であっても、還元性ガスであってもよい。たとえば、第一のガスは空気や酸素であり、第二のガスが酸素を注入される側のプロセスガスであり、不活性ガスなどを例示できる。この場合、第一の電極は陰極でカソードとして働き、また、第二の電極は陽極でアノードとして働く。

【0021】また、 NO_x 分解装置や水蒸気除去装置の場合、第一のガスは、不活性ガスや空気である。第二のガスは、 NO_x や水蒸気を含むプロセスガスであり、各種内燃機関の排ガスの他、不活性ガスや水素、メタンである。この場合、第一の電極は陰極でカソードとして働き、また、第二の電極は陽極でアノードとして働く。

【0022】固体電解質層の材質は、イットリア安定化ジルコニア、イットリア部分安定化ジルコニア、酸化セリウム系セラミックスの他、ランタンガレート、スカンジウム安定化ジルコニア、イッテルビア安定化ジルコニアを例示できる。

【0023】陽極の主原料は、ランタンを含有するペロブスカイト型複合酸化物であることが好ましく、ランタンマンガンナイト又はランタンコバルタイトであることが更に好ましく、ランタンマンガンナイトが一層好ましい。ランタンマンガンナイトは、ストロンチウム、カルシウム、クロム、コバルト、鉄、ニッケル、アルミニウム等をドーパしたものであってよい。

【0024】陰極の主原料は、ニッケル、酸化ニッケル、ニッケル-ジルコニア混合粉末、酸化ニッケル-ジルコニア混合粉末、パラジウム、白金、パラジウム-ジルコニア混合粉末、白金-ジルコニア混合粉末、ニッケル-セリア、酸化ニッケル-セリア、パラジウム-セリア、白金-セリアの各混合粉末等が好ましい。

【0025】スルーホール導電体の材質は、鉄、コバルト、ニッケル、銅、アルミニウム、珪素、金、銀、白金、パラジウム、ルテニウム、モリブデン、タングステンなどの金属、ランタンクロマイト、ランタンコバルタイト、ランタンマンガンナイトなどの導電性セラミックス、前記した金属とセラミックスとの複合材料、前記した導電性セラミックスとセラミックスとの複合材料が好ましい。

【0026】また、本発明は、前記の電気化学装置を複数積層して構成した集積電気化学装置を提供するものである。

【0027】好適な実施形態においては、集積電気化学装置は、前記の電気化学装置を複数備えている。そして、セラミックスからなる周壁部および周壁部に埋設されている周壁部内スルーホール導電体を備えており、周壁部の内側に第一のガス通路と第二のガス通路とが形成されており、複数の固体電解質層が周壁部の内側に設けられており、第一の電極が第一のガス通路に面しており、第二の電極が第二のガス通路に面している。

【0028】図2-図4は、この実施形態に係るものである。図2は、集積電気化学装置30の各層を示す分解斜視図であり、図3は、図2のIII-III線断面図であり、図4は、図2のIV-IV線断面図である。

【0029】図3、図4の例では、例えば5列の電気化学装置5A-5Eを積層し、集積電気化学装置内に組み込んである。図2においては、紙面の制約から、装置の上端から固体電解質層9Dまでの各部分を分解斜視図として示す。

【0030】装置30は、複数の電気化学装置9A-9Eを備えた機能部13と、機能部13を包囲する周壁部12とからなる。装置30の全体は、例えばグリーンシート積層法によって作製されている。即ち、末端層1Aと末端層1Bとの間に、セパレータ層8A、8B、8C、8D、8E、8Fと、電気化学装置9A、9B、9C、9D、9Eとが、交互に積層されている。各セパレータ層8A-8Fには、それぞれ図2に示すような平面形状の中空部が形成されており、これによって第一のガス通路3および第二のガス通路4が形成されている。

【0031】各電気化学装置9A-9Eは、図1を参照しつつ説明した装置と同様である。ただし、15A、15Bは電気化学セルであり、16A、16Bは第一の電極であり、17A、17Bは第二の電極である。なお、図2においては、固体電解質層上の各電極は図示していない。

【0032】本例では、装置30内において、第一のガス通路3と第二のガス通路4とが交互に設けられている。

【0033】周壁部スルーホール導電体2Aは、末端層1A、セパレータ層8A、固体電解質層9Aを貫通している。導電体2Bは、固体電解質層9Aおよびセパレー

タ層8Bを貫通している。導電体2Cは、セパレータ層8Cおよび固体電解質層9Cを貫通している。導電体2Dは、固体電解質層9Cおよびセパレータ層8Dを貫通している。導電体2Eは、セパレータ層8Eおよび固体電解質層9Eを貫通している。導電体2Fは、固体電解質層9E、セパレータ層8Fおよび末端層1Bを貫通している。なお、本例では、導電体内の電気抵抗を削減するために、図2に示すように、各層において各導電体を2箇所ずつ設けてある。しかし、各導電体の個数や形状は限定されない。

【0034】電気化学装置5Aの末端のセル15Aの電極17Bは周壁部スルーホール導電体2Aに接続されている。また、電気化学装置5Aの他端のセル15Aの電極16Bは、周壁部12内にまで延びており、スルーホール導電体2Bに接続されている。同様に、電気化学装置5Bの末端のセル15Bの電極17Bはスルーホール導電体2Bに接続されており、他端のセル15Bの電極16Bは、周壁部12内にまで延びており、スルーホール導電体2Cに接続されている。同様に、電気化学装置5Cの末端のセル15Aの電極17Bはスルーホール導電体2Cに接続されており、他端のセル15Aの電極16Bは、周壁部12内にまで延びており、スルーホール導電体2Dに接続されている。同様に、電気化学装置5Dの末端のセル15Bの電極17Bはスルーホール導電体2Dに接続されており、他端のセル15Bの電極16Bは、周壁部12内にまで延びており、スルーホール導電体2Eに接続されている。同様に、電気化学装置5Eの末端のセル15Aの電極17Bはスルーホール導電体2Eに接続されており、他端のセル15Aの電極16Bは、周壁部12内にまで延びており、スルーホール導電体2Fに接続されている。導電体2A、2Fは、図示しない外部の端子に接続されている。

【0035】図3においては、第一のガス通路、第二のガス通路への各ガス供給ルート、あるいは各通路からのガスの排出ルートについては、図示していない。こうしたガス供給ルート、排出ルートについては、通常法を利用できる。例えば、図2の分解斜視図および図4の断面図に示すように、第一のガス供給路10Aから第一のガス通路3へとガスを供給し、次いで別のガス供給路10Bを通して、より下側のガス通路3へとガスを流すことができる。更に、ガス供給路10C、通路3および排出路10Dを通してガスを流し、装置外へと排出させる。

【0036】同様に、第二のガス供給路11A、第二のガス通路4、ガス供給路11B、通路4、ガス供給路11C、通路4、ガス排出路11Dの順にガスを流す。

【0037】こうした実施形態による作用効果について述べる。

【0038】各電極には酸化性ガスや還元性ガスに対する耐蝕性が必要であるので、ニッケル-ジルコニアサーメットやランタンマンガナイトなど、使用可能な材質が

限られている。これに対して、周壁部スルーホール導電体2A-2Fには、こうした耐蝕性は不要であるので、導電性が高く、セラミックスの作動温度で溶融や変形を起こさない高融点金属が好ましい。ところが、こうした材質の相違のために、スルーホール導電体と各電極の表面との間では、接触絶縁抵抗が大きくなる。

【0039】これに加えて、こうした構造体の温度が上昇すると、各電極は固体電解質層の変形に追従して変形する。一方、周壁部スルーホール導電体は、主としてセパレータ層を構成するセラミックスの変形に追従して変形する。このため、両者の変形量の相違によって、周壁部スルーホール導電体と各電極との間には、矢印A方向（図3参照）に向かって応力が残留した状態となる。このため、界面において接触状態が不均質な状態となりやすい。

【0040】例えば特開平1-128359号公報に記載の固体電解質型燃料電池においては、こうした構造体内で、各電気化学セルが並列接続されている。これは、電気化学装置からの取り出し電圧が高々0.7-1.0ボルト程度であり、このため電流値が大きいことを意味している。取り出し電圧は一定であるので、この電流量は、電気化学セルの個数に比例して増大する。一方、この界面全体は、前述した理由から界面抵抗が大きくなっており、かつ界面のごく一部は導電体と電極表面とが強く接触した状態になっているものと推定できる。こうした状態で、大電流が周壁部スルーホール導電体と電極表面との界面を流れると、界面の一部に電流が集中し、局所的な発熱を生じ、界面付近の組織を変質させるものと考えられる。

【0041】本実施形態においては、このような周壁部内部の電気化学セルを直列に接続することで、取り出し電圧を大きくし、かつスルーホール導電体と電極表面との界面を流れる電流量を削減することで、界面における局所的な電流集中を小さくし、局所的な顕著な発熱が生じないようにした。

【0042】また、図2-図4の実施例においては、電気化学セルを構成する固体電解質層と周壁部とを同種のセラミック固体電解質材料によって形成し、一体化させることによって、同種の固体電解質材料からなる一体の構造体を生成させている。

【0043】このような構造体に熱サイクルが加わると、固体電解質層上の各電極は、固体電解質層の熱膨張、収縮に追従して変形する。これと同時に、周壁部スルーホール導電体は、周壁部の熱膨張、収縮に追従して変形する。この際、周壁部と各固体電解質層とを前記したように一体の同種材料からなる骨格として形成することで、固体電解質層上の各電極と周壁部スルーホール導電体の端面との位置ズレがほとんどなくなる。特に、矢印A（図3参照）で示すような、電極の面内方向における位置ずれを消去できる。

【0044】好適な実施形態においては、セパレータ層のセラミックス組織と固体電解質層のセラミックス組織とが微視的に見て連続している。

【0045】また、好適な実施形態においては、第一の電極および第二の電極がそれぞれ周壁部内にまで延びており、スルーホール導電体の端面に対して直接に接触している。図3、図4においては、こうした形態を図示した。これによって、装置内部における電気抵抗を更に減少させ得る。

【0046】また、好ましくは、周壁部が、第一のガス通路および第二のガス通路を気密に包囲する複数のセパレータ層を備えており、固体電解質層が周壁部内まで延び、固体電解質層の端部が、隣り合うセパレータ層の間に挟まれている。

【0047】また、好適な実施形態においては、第一のガス通路3のうち少なくとも一つが、隣合う一組のセル15A、15Bによって挟まれており、これらのセルの各第一の電極が第一のガス通路3を挟んで対向している。また、第二のガス通路4のうち少なくとも一つが、隣合う一組のセル15A、15Bによって挟まれており、これらのセルの各第二の電極が第二のガス通路を挟んで対向している。こうした設計を採用することで、第一のガス通路と第二のガス通路とが、セルを挟んで交互に位置するようになり、無駄な空間が発生しない。このため、単位体積当たりの効率が高くなる。

【0048】周壁部は、絶縁性セラミックスや固体電解質材料によって形成することができる。これらは、電気化学セルの作動温度において、第一のガス通路および第二のガス通路に対して耐蝕性を有する材質であれば、特に制限されない。こうした絶縁性セラミックスとしては、アルミナ、ムライト、マグネシアスピネル、カルシアまたはマグネシア安定化ジルコニアがある。また固体電解質型材料としては、イットリア安定化ジルコニア、イットリア部分安定化ジルコニア、酸化セリウム系セラミックスの他、ランタンガレート、スカンジウム安定化ジルコニア、イッテルビア安定化ジルコニアを例示できる。

【0049】なお、周壁部を構成するセラミック固体電解質材料と固体電解質層を構成する材料とが同種であるとは、その基本成分が同じであることを意味している。複数の基本成分がある場合には、複数の基本成分が同じであれば、各基本成分の構成比率が異なっていたとしても、やはり同種のセラミックスであると言える。また、少量のドーパ成分については異動があっても差し支えない。基本組成が同じであれば、一体焼結後には、周壁部と固体電解質層とのセラミックス組織が連続し、継ぎ目は消失するからである。

【0050】周壁部を構成するセラミックスと、固体電解質層を構成するセラミックスとの間で、ドーパ成分が異なっている場合には、異なっているドーパ成分の重量

比率は全体の10重量%以下であることが好ましい。

【0051】本発明の集合電気化学装置の製造方法は限定されないが、生産性の観点からは、グリーンシート積層法によって製造することが特に好ましい。この際には、図1、図2に示すような各層を、ドクターブレード法、プレス法、押し出し法等によって成形して各グリーンシートを作製し、これを積層し、焼結させる。

【0052】成形の際に使用できる有機バインダーとしては、ポリメチルアクリレート、ニトロセルロース、ポリビニルアルコール、メチルセルロース、エチルセルロース、スターチ、ワックス、アクリル酸ポリマー、メタクリル酸ポリマーを例示できる。造孔材としては、セルロース、カーボン、アクリルパウダー等を例示できる。

【0053】好適な実施形態においては、ある電気化学セルの第一の電極の端部と、この電気化学セルに隣接する他の電気化学セルの第二の電極の端部との間に、固体電解質層とは別体の絶縁体を介在させる。この実施形態について、以下に述べる。

【0054】図5は、図1の電気化学装置における、隣接する電気化学セルの間の接続部分を拡大して示す断面図である。一方のセルの第一の電極16Cの端部31と、他方のセルの第二の電極17Dの端部32とが、固体電解質層9を挟んで対向している。第一の電極16Cと16Dとの間には隙間23が設けられており、第二の電極17Cと17Dとの間には隙間24が設けられている。端部31と32とはスルーホール導電体22によって接続されている。

【0055】同一のセルに属する電極16Cと17C、16Dと17Dとの間で酸素イオン O_2^- が移動すると、それに見合って電子 e^- がスルーホール導電体22を移動する。しかし、隣接する異なるセルに属する電極16Cと17D、あるいは16Dと17Cの間でも、酸素イオン O_2^- が移動する場合がある。特に、スルーホール導電体22の周囲では、端部31と32との間で酸素イオンが矢印Cのように移動する。また、電極17Cの端部と電極16Dとの間でも、矢印Eのように酸素イオンが移動する。

【0056】これらの酸素イオンの移動が生ずると、スルーホール導電体22の周りに閉回路が生成し、隣接する各セルにおいて生成した起電力の一部を消費するので、いずれも電流損失の原因となる。また、閉回路を流れる電流のため、燃料、酸化剤が消費され、燃料利用率の低下を招く。

【0057】本実施形態においては、ある電気化学セルの第一の電極の端部と、この電気化学セルに隣接する他の電気化学セルの第二の電極の端部との間に、固体電解質層とは別体の絶縁体を介在させる。これによって、矢印Cのような端部間での酸素イオンの移動が少なくとも抑制、防止され、電流損失を低減できる。

【0058】絶縁体の位置は、ある電気化学セルの第一

の電極の端部と、この電気化学セルに隣接する他の電気化学セルの第二の電極の端部との間であれば限定されない。例えば、固体電解質層9の一方の面9c上であってよく、他方の面9d上であってよく、貫通孔9aの内壁面上（つまりスルーホール導電体22の側周面22a上）であってよく、更には固体電解質層9の内部に埋設されていてもよい。

【0059】固体電解質層とは別体の絶縁体は、酸素イオン透過能は有していないことが必要であるが、その絶縁性能は設計事項である。しかし、例えば絶縁体の体積抵抗率が $1000\Omega \cdot \text{cm}$ 以上であることが好ましい。

【0060】絶縁体の材質としては、例えばアルミナ、シリカ、ムライト、マグネシア、アルミナ-マグネシアスピネルを例示できる。

【0061】絶縁層の厚さは特に制限はないが、 $10-50\mu\text{m}$ が好ましい。

【0062】好適な実施形態においては、絶縁体が、第一の電極の端部と固体電解質層との間に設けられている絶縁層であり、また、絶縁体が、第二の電極の端部と固体電解質層との間に設けられている絶縁層である。これによって、最も効率的に端部間を絶縁可能である。

【0063】好適な実施形態においては、隣接する一対の電気化学セルの間で第一の電極間に隙間が設けられており、この隙間に絶縁層が露出している。また、隣接する一対の電気化学セルの間で第二の電極間に隙間が設けられており、この隙間に絶縁層が露出している。

【0064】図6-図9は、この実施形態に係る電気化学装置を示すものである。図6(a)は電気化学装置35Aを示す断面図であり、図6(b)は、固体電解質層9にスルーホール導電体および絶縁層が形成された状態を示す平面図であり、図6(c)は装置35Aの平面図である。

【0065】装置35Aには、複数個、例えば4個の電気化学セル15が設けられており、各セル15は互いに直列接続されている。固体電解質層9は、本例では平面的に見て長方形の平板形状をしている。固体電解質層9の一方の面9c上には第一の電極16が例えば4個形成されており、他方の面9d上には第二の電極17が例えば4個形成されている。Bは、電気化学セルの主要な作用領域である。

【0066】隣接する第一の電極16の間には細長い隙間23が形成されており、隣接する第二の電極17の間には細長い隙間24が形成されている。各電極16の端部31は、隣接するセルの電極17の端部32に対して、固体電解質層9を挟んで対向している。固体電解質層9内には、前記した端部の対向領域においてスルーホール導電体22が設けられている。各スルーホール導電体22によって、隣接する電気化学セル15の電極16と17とが直列に接続されている。

【0067】スルーホール導電体22の周囲において、

固体電解質層9の一方の面9c上に、絶縁層25A、25Bが設けられており、固体電解質層9の他方の面9d上に、絶縁層25C、25Dが設けられている。これによって、各電極の端部と固体電解質層の表面との間には絶縁層がそれぞれ介在し、絶縁することになる。隙間23には絶縁層25Bが露出し、隙間24には絶縁層25Dが露出する。

【0068】好適な実施形態においては、スルーホール導電体と固体電解質層との間に絶縁体を設けるか、あるいは、スルーホール導電体の内部に絶縁体を設ける。

【0069】図5において、スルーホール導電体22自体も、電極16C、16Dに対して、あるいは電極17C、17Dに対して、一種の電極として作用し、電力を消費することがある。このため、スルーホール導電体22と固体電解質層9との間に絶縁体を設けることによって、スルーホール導電体が電極として作用しないようにし、これによる電力の消費を防止できる。

【0070】図7-図9は、この実施形態に係るものである。図7(a)-(c)の電気化学装置35Bは、図6の装置35Aと同様のものであるが、スルーホール導電体22の側周面に絶縁層25Eが形成されており、これによってスルーホール導電体22と貫通孔9aの内壁面とが絶縁されている。

【0071】好適な実施形態においては、絶縁層が、複数の電気化学セルが配列されている配列方向と垂直な方向において、第一の電極または第二の電極によって被覆されていない延在部を備えている。図8、図9は、この実施形態に係るものである。

【0072】図8(a)-(c)の電気化学装置35Cは、図7の装置35Bとほぼ同様のものである。ただし、各スルーホール導電体22Aの平面形状は、円形ではなく長方形である。また、特に図8(c)に示すように、絶縁層は、複数の電気化学セルが配列されている配列方向Zと垂直な方向Yにおいて、電極16によって被覆されていない延在部25Fを備えている。

【0073】この実施形態においては、たとえ絶縁層と電極との相対的位置が製造上の誤差からズレたものとしても、確実に電極の端部を絶縁できるという利点がある。即ち、図6、図7に示したような形態では、Y方向に見て、電極16の縁と絶縁層25A、25Bとの縁とがほぼ同一線上にある。このため、製造上の誤差によって、絶縁層25A、25Bの位置と電極16の位置とが位置ずれを起こすと、電極16の縁と絶縁層25A、25Bとの縁とが、Y方向に見てずれてしまう。この結果、電極16の端部31の一部分は、絶縁層によって絶縁されることなく、固体電解質層9の一方の面9cに対して直接に接触することになる。この結果、前述した閉回路を生じさせる。

【0074】これに対して、延在部25Fを設けることによって、前述のように、電極と絶縁層との平面的位置

に位置ずれが生じたものとしても、そうした位置ずれは延在部によって吸収され、電極の端部の絶縁は確保される。

【0075】図9(a) - (c)の電気化学装置35Dは、図8の装置35Cとほぼ同様のものである。ただし、特に図9(b)に示すように、延在部25Fの他に、各セルの作用領域B内の矢印Y方向の縁面に沿って延びる延在部25Gが形成されている。

【0076】

【発明の効果】以上述べたように、本発明によれば、複数の電気化学セルを電気的に接続してなる構造の電気化学装置において、各電気化学セルの各電極に至るまでの各ガスの拡散抵抗を減らすことができるようにし、かつ、隣接する電気化学セルの接続部分の材質の劣化を抑制できる。

【図面の簡単な説明】

【図1】(a)は、本発明の一実施形態に係る電気化学装置5を示す断面図であり、(b)は装置5の平面図である。

【図2】電気化学装置5の一部を分解して示す斜視図である。

【図3】図2におけるIII-III線断面図である。

【図4】図2におけるIV-IV線断面図である。

【図5】図1の装置5において、隣接するセル間の接続部分を拡大して示す断面図である。

【図6】(a)は、電気化学装置35Aの断面図であり、(b)は、固体電解質層9にスルーホール導電体22および絶縁層を形成した状態を示す平面図であり、(c)は、装置35Aの平面図である。

【図7】(a)は、電気化学装置35Bの断面図であ

り、(b)は、固体電解質層9にスルーホール導電体22および絶縁層を形成した状態を示す平面図であり、(c)は、装置35Bの平面図である。

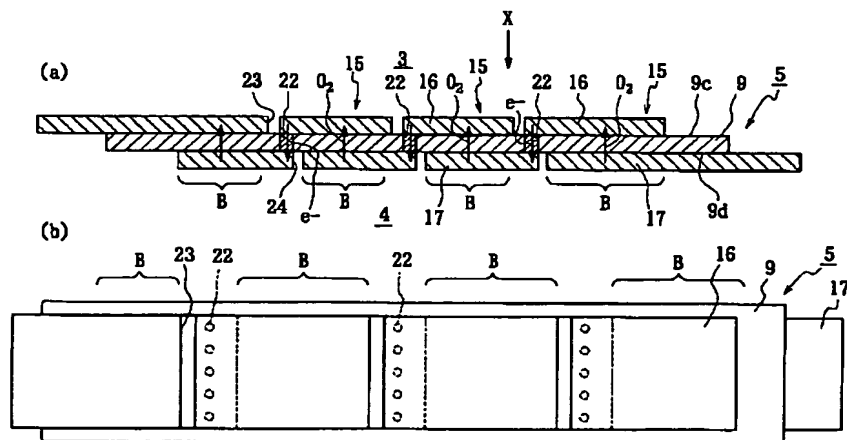
【図8】(a)は、電気化学装置35Cの断面図であり、(b)は、固体電解質層9にスルーホール導電体22および絶縁層を形成した状態を示す平面図であり、(c)は、装置35Cの平面図である。

【図9】(a)は、電気化学装置35Dの断面図であり、(b)は、固体電解質層9にスルーホール導電体22および絶縁層を形成した状態を示す平面図であり、(c)は、装置35Dの平面図である。

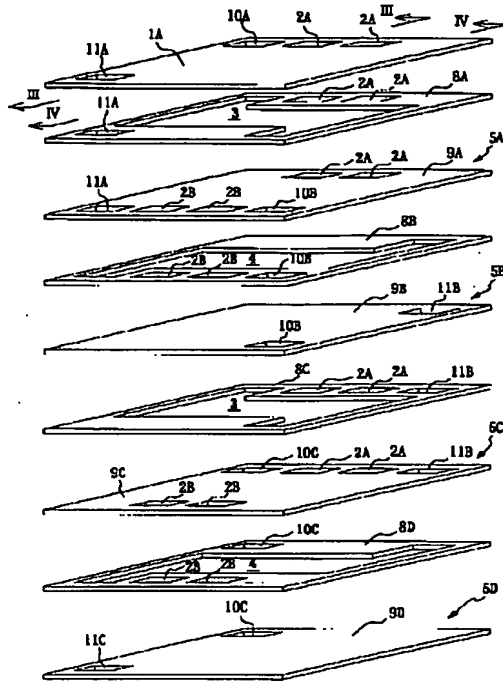
【符号の説明】

1A、1B 末端層 2A、2B、2C、2D、
2E、2F 周壁部スルーホール導電体 3 第一のガス通路 4 第二のガス通路 5、
5A、5B、5C、5D、5E、15 電気化学セル 17、17A、17B 第二の電極 8A、8
B、8C、8D、8E、8F セパレータ層 9
A、9B、9C、9D、9E 固体電解質層 9a 貫通孔 9c 一方の面 9d 他
方の面 10A、10B、10C、10D 第一
のガス供給路 11A、11B、11C、11D 第二のガス供給路 12 周壁部 13
機能部 16、16A、16B 第一の電極 22、22
A スルーホール導電体 23 隣接するセルの第一の電極間の隙間 24
隣接するセルの第二の電極の間の隙間 X 固
体電解質層9に垂直な方向 Y 複数のセルの配列方
向に垂直な方向 Z 複数のセルの配列方向

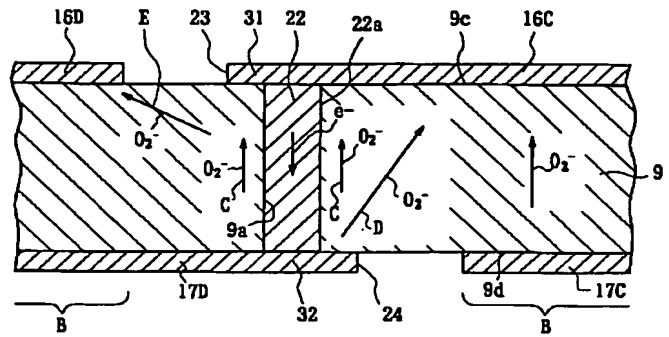
【図1】



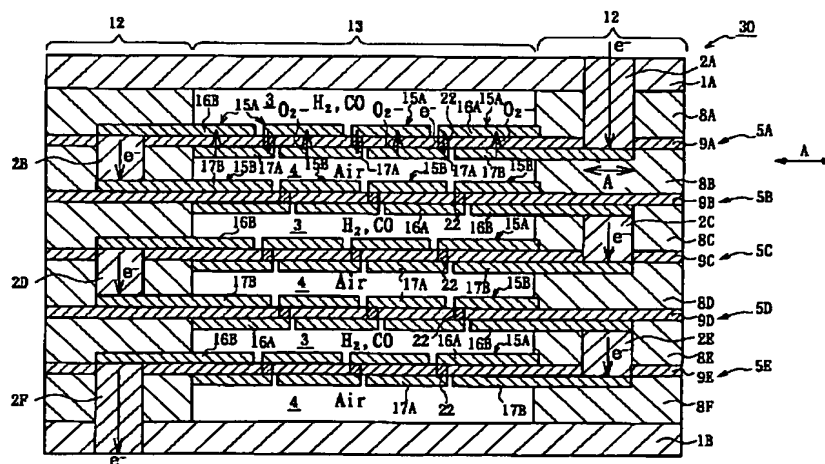
【図2】



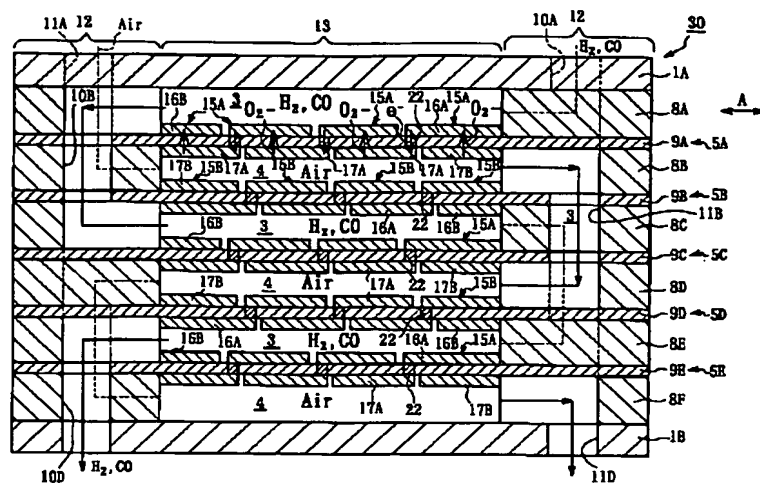
【例5】



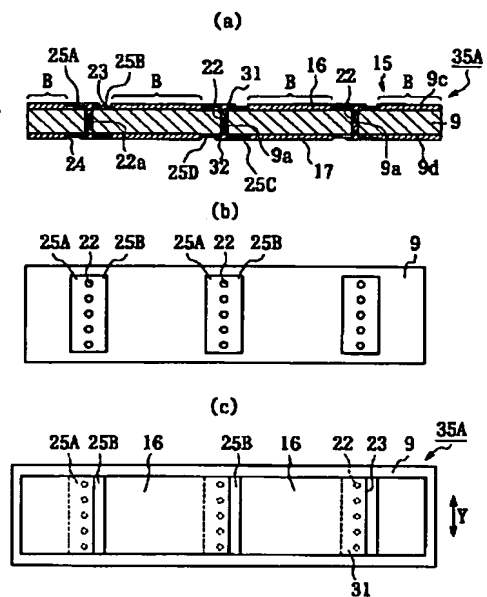
【図3】



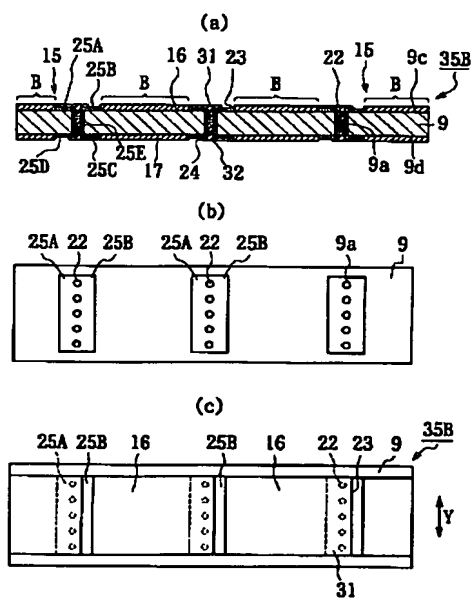
【図4】



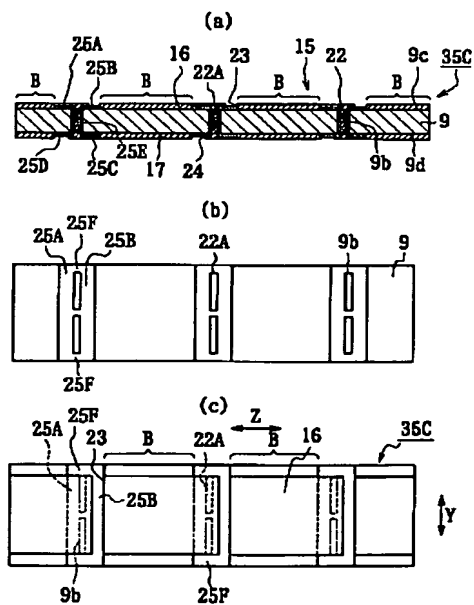
【図6】



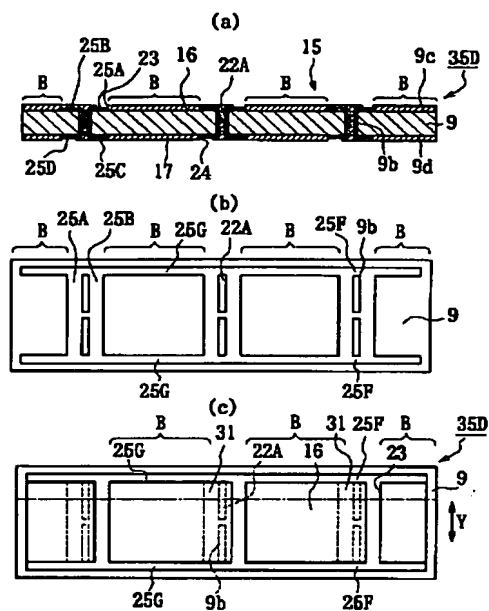
【図7】



【図8】



【図9】



フロントページの続き

(72)発明者 奥村 清志
愛知県名古屋市瑞穂区須田町2番56号 日
本碍子株式会社内

(72)発明者 龍 崇
愛知県名古屋市瑞穂区須田町2番56号 日
本碍子株式会社内
Fターム(参考) 5H026 AA06 CC08 CV06 EE11

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☒ FADED TEXT OR DRAWING
- ☐ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☒ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.